

Влияние разориентации подложки GaAs на свойства квантовых точек InAs, выращенных методом МПЭ при низких температурах

© А.А. Тонких^{*,^¶}, Г.Э. Цырлин^{*,^}, Н.К. Поляков^{*}, Ю.Б. Самсоненко^{*,†}, В.М. Устинов[†],
Н.Д. Захаров[^], Р. Werner[^], В.Г. Талалаев^{^,•}, Б.В. Новиков[•]

* Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,
190103 Санкт-Петербург, Россия

† Санкт-Петербургский физико-технический научно-образовательный комплекс Российской академии наук,
195220 Санкт-Петербург, Россия

^ Max-Planck Institute of Microstructure Physics,
06120 Halle (Saale), Germany

• Институт физики им. В.А. Фока, Санкт-Петербургский государственный университет,
198504 Петродворец, Россия

(Получена 5 октября 2005 г. Принята к печати 17 октября 2005 г.)

Исследованы структурные и оптические свойства массивов квантовых точек InAs, выращенных на подложках GaAs при низких температурах (250 и 350°C) и различной степени разориентации поверхности. Показано, что низкотемпературный рост на сингулярной поверхности сопровождается формированием конгломератов квантовых точек вдоль петлевых дислокаций, а на разориентированной поверхности — вдоль ступеней, обусловленных вицинальностью поверхности. Образование конгломератов квантовых точек приводит к появлению новой длинноволновой полосы в спектрах экситонной фотолюминесценции. Обнаружена различная степень поляризации спектральной полосы фотолюминесценции для конгломератов разных форм и размеров.

PACS: 68.65.Hb, 78.67.Hc, 73.63.Kv, 78.55.Cr

1. Введение

Исследованиям механизмов формирования и свойств полупроводниковых квантовых точек посвящено большое количество работ в связи с перспективами их применения в новых оптоэлектронных приборах [1,2]. Формирование островков InAs на поверхности GaAs при выращивании методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) происходит в режиме Странского-Крастанова. При этом типичные температуры роста составляют 450–500°C. В данном диапазоне температур десорбция In с поверхности подложки невелика, а качество эпитаксиальных слоев достаточно хорошее с точки зрения приборных применений. Согласно теоретическим расчетом [3], при понижении температуры роста происходит уменьшение размеров и увеличение плотности квантовых точек, наблюдавшееся в ряде экспериментальных работ [4,5]. Однако диапазон более низких температур 250–350°C остается до сих пор мало изученным. В связи с этим возникает вопрос — что будет происходить с массивом квантовых точек при таких температурах роста.

В настоящей работе этот вопрос детально исследуется методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) и фотолюминесценции (ФЛ).

2. Эксперимент

Исследуемые структуры выращивались на полуизолирующих подложках GaAs методом МПЭ на установке ЭП1203. Слой InAs выращивался на буфер-

ном слое GaAs при температурах осаждения 250 или 350°C. После этого слой InAs зарастивался при той же температуре подложки тонким (5 нм) слоем GaAs. Затем температура подложки повышалась до 550°C, и осаждался прикрывающий слой GaAs. Часть образцов выращивалась на вицинальных подложках GaAs, разориентированных в направлениях [001], [011] на углы 3, 5 и 7°. Эффективная толщина InAs-слоя во всех случаях составляла 3 монослоя (МС), т.е. около 1 нм. Скорость осаждения InAs поддерживалась достаточно низкой (0.01 МС/с) для стимуляции поверхностной миграции адатомов In. При этом соотношение потоков As₄ и In составляло ~ 100. Осаждение InAs на поверхность GaAs контролировалось с помощью системы дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО). Ростовые параметры исследуемых структур сведены в таблицу.

Исследование структурных свойств проводилось методом ПЭМ, в том числе высокого разрешения, на электронных микроскопах JEM4010 и Philips CM20 при ускоряющих напряжениях 400 и 200 кВ соответ-

№ образца	Температура осаждения InAs, °C	Угол разориентации подложки, град	Направление разориентации поверхности
1	250	0	—
2	250	7	[011]
3	350	0	—
4	350	7	[001]
5	350	5	[001]
6	350	3	[001]

¶ E-mail: alex234@newmail.ru

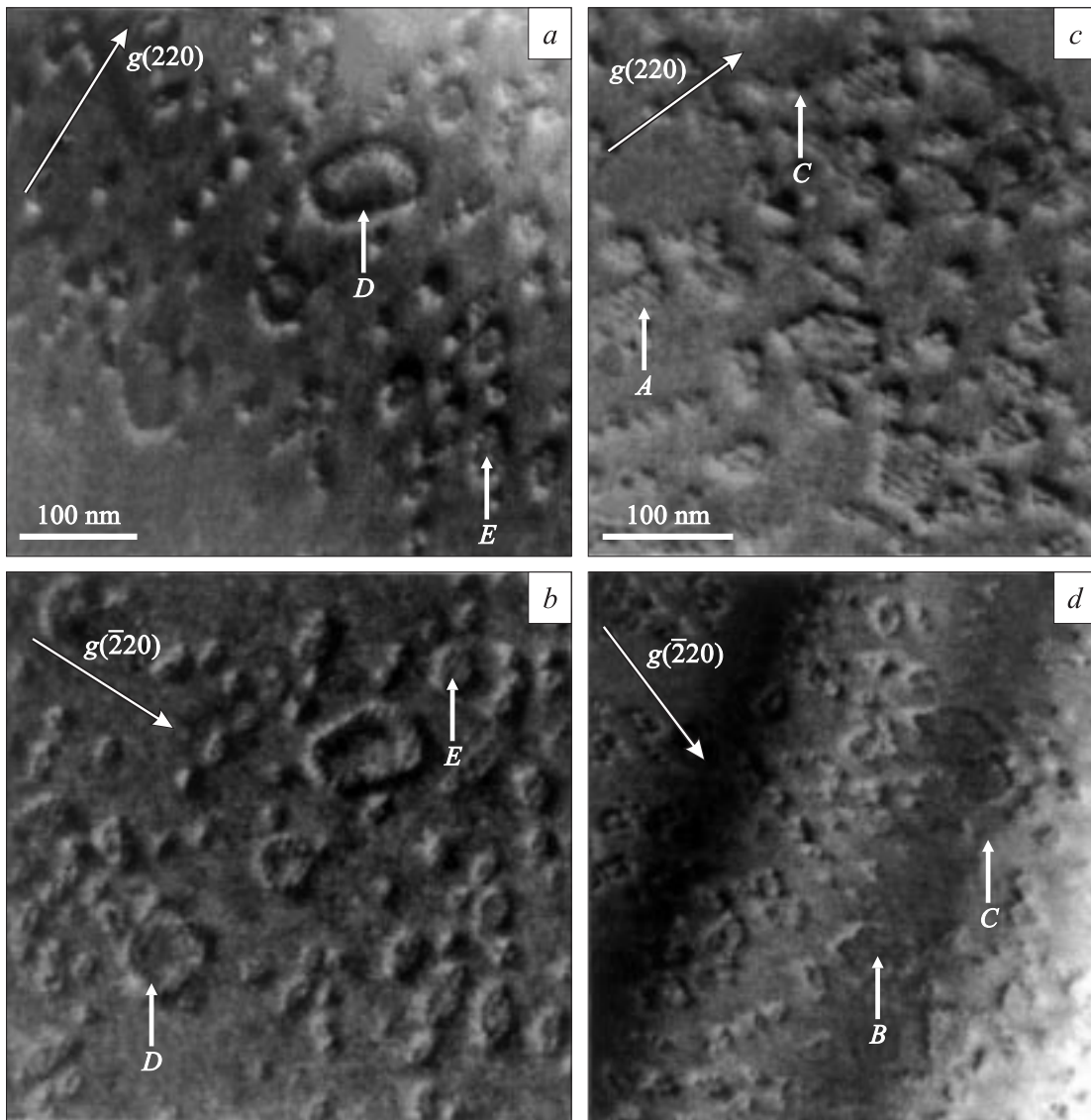


Рис. 1. ПЭМ-изображение в плане образца 1 (*a* — в отражении $g(220)$, *b* — в отражении $g(\bar{2}20)$) и образца 2 (*c* — в отражении $g(220)$, *d* — в отражении $g(\bar{2}20)$).

ственно. В ряде случаев ПЭМ-изображения поперечного сечения анализировались методом фурье-фильтрации. При фильтрации использовались только прошедший пучок и 4 химически чувствительных отражения типа $\{200\}$.

Исследования ФЛ проводились в стандартной lock-in конфигурации при температуре образцов 300 К. Возбуждение осуществлялось Ag^+ -лазером на длине волны 488 нм. На выходе из 50 см монохроматора излучение детектировалось охлаждаемым Ge-фотоприемником с порогом чувствительности, соответствующим 1.7 мкм. При измерениях степени поляризации ФЛ образец вращался вокруг направления (100) относительно плоскости поляризации луча лазера, падающего на образец нормально. Излучение образца анализировалось поляризационным фильтром, стоявшим перед входной щелью монохроматора.

3. Результаты и их обсуждение

При осаждении InAs во всех образцах наблюдалась характерная трансформация картин ДБЭО с линейчатых на точечные, что свидетельствовало об образовании на поверхности трехмерных островков InAs. Исследования структурных свойств выращенных образцов методом ПЭМ также подтверждают присутствие в них InAs нановключений. На рис. 1 и 2 представлен контрастный анализ структуры образцов 1 и 2, выращенных на сингулярной и вицинальной поверхностях соответственно. Темнопольные изображения структур были получены в планарной геометрии в отражениях (220) и $(\bar{2}20)$. Прежде всего следует отметить наличие черно-белого контраста у всех нановключений, что свидетельствует о наличии деформаций решетки, вносимых этими структурными особенностями. Во всех случаях вектор дифра-

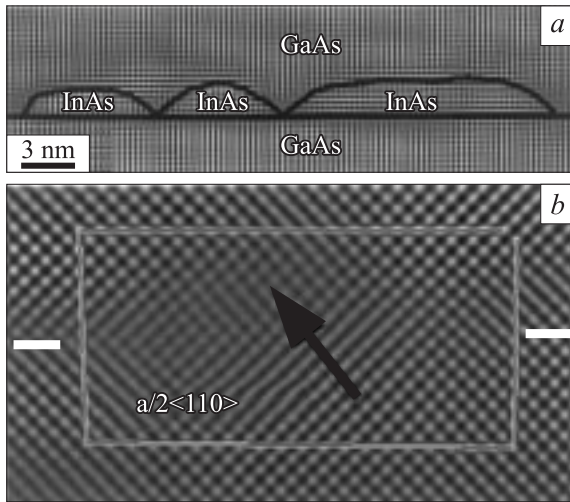


Рис. 2. ПЭМ-изображения высокого разрешения поперечных сечений образца 1 после фурье-фильтрации: *a* — область с КТ InAs, *b* — область с петлевой дислокацией и обозначенным контуром Бюргера.

ции g направлен от светлого к черному, что указывает на внедренный тип этих особенностей. Таким образом, нановключения создают в матрице деформацию сжатия, что вполне закономерно при образовании $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -квантовых точек (КТ) в решетке GaAs.

Другой особенностью наблюдаемого контраста является наличие его периодической модуляции. В случае образца 2, выращенного на вицинальной поверхности, модуляции наблюдаются только в брэгговском отражении $g(220)$ (рис. 1, *c*), направленном перпендикулярно атомным ступеням, тогда как в отражении $g(\bar{2}20)$ (рис. 1, *d*) контраст пропадает. Это свидетельствует о том, что КТ имеют вид стержней, ориентированных вдоль атомных ступеней. Большая часть таких КТ объединена в конгломераты (обозначения *A*, *B* на рис. 1, *c*, *d*) с расстоянием около 8 нм между стержнями. Небольшая часть нановключений остается в виде „обычных“ одиночных КТ (обозначение *C* на рис. 1, *c*, *d*).

На темнопольных изображениях образца 1, выращенного на сингулярной поверхности (001), периодический контраст наблюдается в обоих отражениях и направлен перпендикулярно отражающему вектору g (рис. 1, *a*, *b*). Это говорит о том, что конгломераты образованы небольшими КТ, расположенными в узлах квадратной сетки с периодом порядка 8 нм. Хорошо видны петлеобразные конгломераты, образованные одиночными КТ. Изображение поперечного сечения одного из петлеобразных кластеров в образце 1 после фурье-фильтрации представлено на рис. 2, *a*. Полосы решетки сдвинуты на половину периода внутри кластера относительно внешних полос. Темные линии, выделяющие КТ, приведены по геометрическому месту точек, в которых контраст от полос решетки пропадает, что соответствует концентрации In, близкой к 20%. Из приведенного изоб-

ражения следует, что средняя высота InAs кластеров составляет около 3 нм.

Причина выстраивания КТ в петли окончательно не ясна. Возможно, на начальном этапе происходит формирование большого InAs-островка, в котором упругие напряжения релаксируют путем формирования дислокационной петли. Затем большой островок разбивается на маленькие КТ, которые декорируют эту дислокационную петлю. Представленные на рис. 2, *b* изображение поперечного среза свидетельствует в пользу этой гипотезы. Видно, что начальный и конечный концы контура Бюргера, пересекающего границу раздела, не совпадают. На этом основании можно утверждать, что внутри этого контура есть дислокация с вектором Бюргера $a/2\langle 110 \rangle$, наклонным к границе раздела. Последнее означает, что такая дислокация возникает в результате скольжения.

Таким образом, анализ ПЭМ-изображений позволяет установить, что в сингулярном образце 1 формирование конгломератов InAs происходит в ряде случаев вокруг дислокационных петель, а в разориентированном образце 2 — вдоль вицинальных ступеней. Такие кластеры InAs состоят из нескольких десятков одиночных КТ.

Наблюдаемые структурные особенности массивов КТ проявляются весьма характерно в их спектрах ФЛ. На рис. 3 представлены спектры, полученные для образцов 1 и 2. В спектре сингулярного образца 1 доминирует полоса, связанная с рекомбинацией в объемном GaAs с максимумом на 1.42 эВ. Кроме этого, в длинноволновой части спектра видна полоса AQD с максимумом на 0.77 эВ. Следует отметить, что появление AQD-полосы является следствием низкотемпературного роста квантовых точек InAs. Как было показано ранее в [6,7], эта полоса соответствует рекомбинации экситонов в ассоциатах, состоящих из нескольких рядом стоящих КТ InAs. В спектре ФЛ вицинального образца 2 (рис. 3, кривая 2) полоса AQD доминирует. Помимо нее наблю-

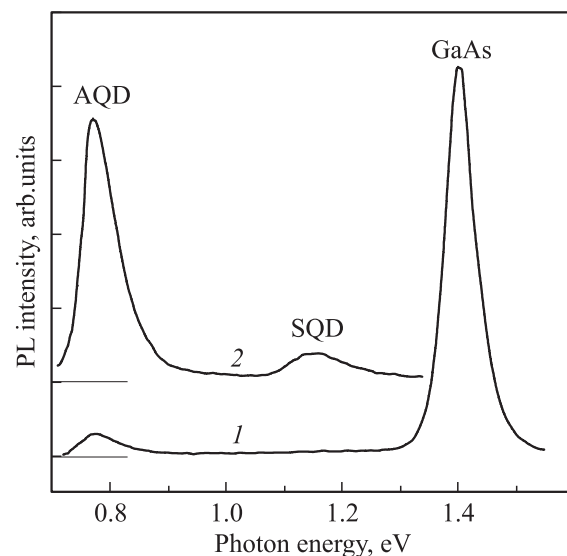


Рис. 3. Спектры ФЛ образцов 1 (кривая 1) и 2 (кривая 2) при комнатной температуре.

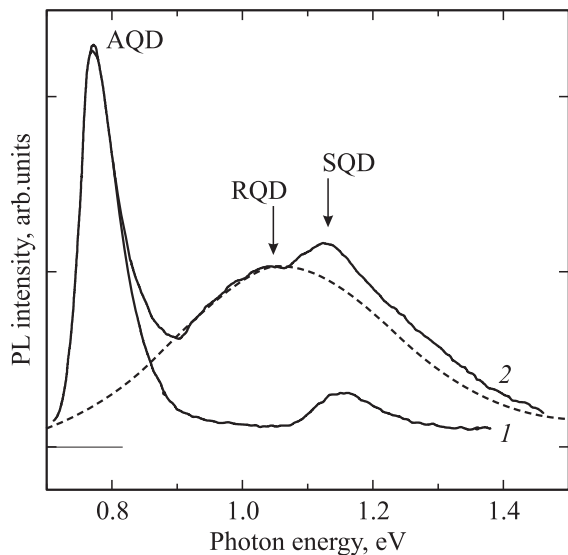


Рис. 4. Спектры ФЛ образца 2, измеренные для двух направлений поляризации относительно вицинальных ступеней: 1 — нормально, 2 — параллельно.

дается также полоса одиночных КТ InAs с максимумом на 1.15 эВ, которая не видна в образце 1.

Конгломераты КТ InAs могут рассматриваться как массивы островков большой плотности. Рост плотности массива связан с уменьшением температуры роста, что находит свое объяснение в рамках кинетической модели [3]. Тот факт, что поверхность роста не полностью покрыта островками InAs, является следствием малого числа центров зарождения островков InAs. При низкой температуре роста центрами зарождения новых островков могут являться: 1) зародыши, достигшие критического размера; тогда новые островки начинают образовываться рядом с уже сформировавшимися; 2) несовершенства поверхности роста, в частности дислокационные петли и атомные ступени. В случае сингулярного образца зарождение островков происходит либо вокруг дислокационных петель (рис. 1, *a, b* — кластеры, отмеченные „D“), либо вокруг закритических зародышей, тогда формируются кластеры „E“ (рис. 1, *a, b*), не обладающие кольцевой геометрией. Дислокации являются весьма мощными каналами безызлучательной рекомбинации носителей. Их наличие в сингулярном образце, вероятно, обуславливает слабую интенсивность AQD-полосы, а указанный выше кластерный механизм роста — отсутствие в спектре ФЛ полосы одиночных КТ.

В вициальном образце 2 центрами зарождения островков являются только атомные ступени. При этом выделенное направление — по нормали к направлению разориентации (вдоль атомных ступеней) — является преимущественным для формирования кластеров КТ. Рост одиночных КТ в данном случае также возможен и имеет место на вициальных террасах, образованных в результате складирования атомных ступеней. Поэтому в спектре ФЛ образца 2 наблюдаются обе полосы AQD и SQD (рис. 3, кривая 2).

Исследование поляризации спектра ФЛ низкотемпературных массивов КТ показывает, что полоса AQD во всех случаях практически неполяризована. Этот результат соответствует представлениям об образовании для конгломератов единой квантовой ямы большой мощности. Экситонные состояния в ней являются сильно локализованными в направлении роста. Для направлений в плоскости роста потенциал локализации экситонов в яме зависит от ориентации поверхности. Несмотря на то что широкие кластеры на вициальной поверхности образуются КТ в виде стержней с выделенным направлением, экситоны в кластерах одинаково слабо локализованы для всех планарных направлений. Их излучение в полосе AQD соответственно деполаризовано (рис. 4). В петлеобразных конгломератах на сингулярной поверхности локализирующий потенциал планарных направлений существенно больше. Однако из-за круговой симметрии конгломерат не имеет результирующего выделенного направления локализации экситонов. Поэтому излучение в полосе AQD у сингулярных образцов также деполаризовано.

Широкая коротковолновая полоса ФЛ (0.9–1.3 эВ) у вициального образца представляет собой комбинацию двух составляющих (рис. 4). Первая, SQD-полоса, с максимумом на 1.15 эВ, деполаризована и соответствует одиночным КТ InAs. Вторая, широкая полоса RQD, с максимумом на 1.05 эВ, имеет высокую степень поляризации, достигающую 90%. Мы связываем ее с образованием цепочек КТ InAs, ориентированных вдоль атомных ступеней. Потенциал локализации экситонов в такой квантовой яме имеет выделенное направление, соответствующее вициальным ступеням.

На рис. 5 приведены спектры ФЛ для образцов 3–6, выращенных при более высокой температуре (350°C) на подложках с разными углами разориентации. Базовым образцом для этой серии является образец 3, выращен-

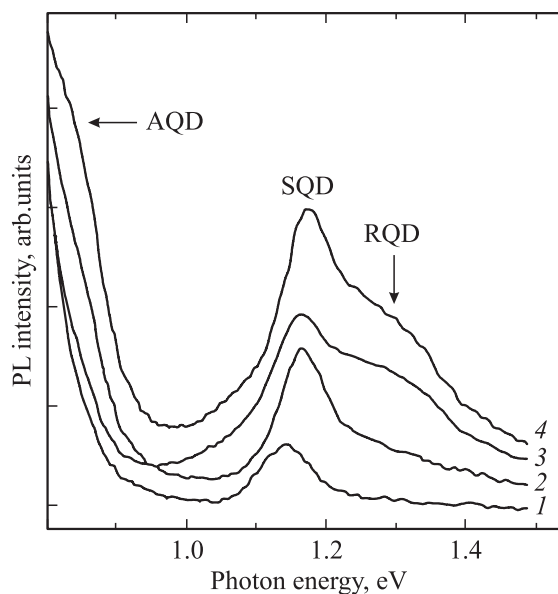


Рис. 5. Спектры ФЛ образцов: 3 (кривая 1), 6 (2), 5 (3) и 4 (4).

ный на сингулярной поверхности. Важное отличие от образца 1 заключается в отсутствии петлевых дислокаций и, как следствие, в более высокой интенсивности ФЛ. Это является следствием более высокой температуры роста. Еще одним следствием этого является увеличение плотности одиночных КТ в образце 3. Благодаря этому в спектре ФЛ появляются SQD-полоса. Для этой серии образцов характерна также инверсия спектрального положения составляющих CQD и RQD и деполяризация полосы RQD при больших углах разориентации, когда образование цепочек КТ вдоль складированных атомных ступеней наиболее вероятно.

Заметим, что поляризационные особенности цепочек КТ проявляются достаточно явно лишь при направлении разориентации [011], когда атомные ступени параллельны направлению [01 $\bar{1}$]. Направления разориентации [00 $\bar{1}$] (образцы 4 и 6) и [001] (образец 5) дают зигзагообразные атомные ступени, ориентированные по двум взаимно перпендикулярным направлениям [011] и [01 $\bar{1}$]. При этом цепочки КТ становятся короче, а результирующий вектор ориентации исчезает. Полоса RQD деполяризуется.

4. Заключение

Установлено, что рост InAs при низкой температуре подложки GaAs сопровождается образованием кластеров квантовых точек InAs различной формы и размеров. При наличии протяженных атомных ступеней (вицинальные поверхности) КТ представляют собой стержни, которые могут формировать крупные конгломераты и цепочки, вытянутые вдоль вицинальных ступеней. Излучение последних, как правило, линейно поляризовано. Рост InAs на сингулярной поверхности GaAs при 250°C приводит к формированию скоплений мелких островков квадратной формы и сопровождается выстраиванием квантовых точек вдоль дислокационных петель, что приводит к снижению интенсивности ФЛ и к отсутствию поляризованных полос в спектре. С повышением температуры роста (до 350°C) исчезают петлевые дислокации и появляются одиночные квантовые точки.

Данная работа выполнена при поддержке фонда РФФИ (№ 05-02-17780), программы SANDiE и программы президиума РАН „Низкоразмерные квантовые структуры“.

Список литературы

- [1] D. Bimberg, M. Grndmann, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (N.Y., Wiley, 1999).
- [2] V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, A.Yu. Egorov, N.A. Maleev. *Quantum dot lasers* (N.Y., Oxford University Press, 2003).
- [3] V.G. Dubrovskii, G.E. Cirlin, V.M. Ustinov. *Phys. Rev. B*, **68**, 075 409 (2003).
- [4] A.A. Tonkikh, V.G. Dubrovskii, G.E. Cirlin, V.A. Egorov, V.M. Ustinov, P. Werner. *Phys. Status. Solidi B*, **236**, R1 (2003).

- [5] N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, D. Bimberg, V.M. Ustinov, N.A. Cherkashin, Yu.G. Musikhin, B.V. Volovik, G.E. Cirlin, Zh.I. Alferov. *Semicond. Sci. Technol.*, **16**, 502 (2001).
- [6] M.V. Maximov, A.F. Tsatsulnikov, B.V. Volovik, D.A. Bedarev, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, N.A. Bert, V.M. Ustinov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, I.P. Soshnikov, P. Werner. *Appl. Phys. Lett.*, **75** (16), 2347 (1999).
- [7] A.A. Тонких. Г.Э. Цырлин, В.Г. Талалаев, Б.В. Новиков, В.А. Егоров, Н.К. Поляков, Ю.Б. Самсоненко, В.М. Устинов, N.D. Zakharov, P. Werner. *ФТП*, **37** (12), 1456 (2003).

Редактор Л.В. Беляков

GaAs substrate misorientation effect on the properties of InAs quantum dots grown at low temperatures by MBE method

A.A. Tonkikh^{*,^}, G.E. Cirlin^{*,^}, N.K. Polyakov^{*}, Yu.B. Samsonenko^{*,†}, V.M. Ustinov[†], N.D. Zakharov[^], P. Werner[^], V.G. Talalaev^{^,•}, B.V. Novikov[•]

* Institute for Analytical Instrumentation
Russian Academy of Sciences,
190103 St. Petersburg, Russia

† Saint Petersburg Physico-Technical Science
and Education Center

of Russian Academy of Sciences,
195220 St. Petersburg, Russia

^ Max-Planck Institute of Microstructure Physics,
D-06120 Halle (Saale), Germany

• V.A.Fok Institute of Physics,
Saint Petersburg State University,
198504 Petrodvorets, Russia

Abstract Structural and optical properties of InAs quantum dot arrays grown at low temperatures (250 and 350°C) on the GaAs substrates having different misorientation angle are investigated. It is shown that low temperature growth is accompanied by the formation of quantum dot clusters along the dislocation loops for singular substrates or along the vicinal surface steps for the misoriented substrates. The formation of the quantum dot clusters leads to the appearance of a new long wavelength band in the photoluminescence spectra. Different polarization degree of the photoluminescence band for quantum dot clusters having different shapes and sizes is observed.